

CeT₂Al₁₀ の高圧・低温下における共鳴非弾性 X 線散乱 —磁性と価数の相関—

関西学院大学大学院 理工学研究科

物理学専攻 水木研究室 舌古裕美子

ランタノイドに属する Ce を含む化合物は、重い電子、価数揺動、磁気秩序相近くでの超伝導現象など興味深い物性を示すことが多い。これは Ce の 4f 電子が、局在性と遍歴性を持ち合わせていることが大きく関係している。遍歴性の 4f 電子が伝導電子と混成することを c-f 混成という。4f 電子の二面性の関係は Doniach 相図で理解され、c-f 混成の強さを指標として、近藤効果と RKKY 相互作用の競合によって説明される。近藤効果は混成によって伝導電子スピンの局在スピンを打消す効果である。一方、RKKY 相互作用は局在スピンの伝導電子スピンを媒介としてスピンを揃えることにより磁性を発現させる作用である。c-f 混成が強いと近藤効果が、c-f 混成が弱いと RKKY 相互作用が相対的に強くなる。

YbFe₂Al₁₀ 型の CeT₂Al₁₀ 系の一つである CeRu₂Al₁₀ は、27K という異常に高い温度で反強磁性転移を示す¹⁾。この Ce 系の磁気モーメントは小さく、そのため Doniach 相図から予測される転移温度は数 K と考えられるため、この系の磁性発現の新規なメカニズムが期待され、現在まで多くの研究がなされているが未だにそのメカニズムはわかっていない。我々は CeT₂Al₁₀ の多くある興味深い物性の中で、反強磁性転移温度 T₀ が突然消失する点に注目した。例えば、CeRu₂Al₁₀ では 4GPa の圧力印加によって T₀ が突然消失し、Ce(Ru_{1-x}Fe_x)₂Al₁₀ では組成が x=0.8 付近で消失が起こる。(Fig.1 挿入図) この物理的圧力や化学的圧力は、c-f 混成の強さをコントロールできるパラメータである。Doniach 相図に従えば、T₀ の突然の消失は c-f 混成がここで強くなったことを意味する。c-f 混成が変化すると Ce の 4f 電子の状態が変わるため、Ce 価数の変化があると考えられる。Ce の価数を直接観測することが出来れば、磁性の発現メカニズムの解明に大きく近づくことが出来る。我々は Ce 価数と反強磁性転移温度 T₀ の消失との相関を調べ、物性・機能の発現を究明するための実験を行った。

実験手法として、共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS; resonant inelastic x-ray scattering) 法を用いた。RIXS 法では電子の励起状態や希土類金属化合物の電荷のゆらぎを直接観測することができ、本課題解決に有効な実験手法である。実験は大型放射光施設 SPring-8 で BL12XU にて行われた。我々の実験では、試料に X 線を照射し Ce の内殻電子を共鳴的に励起させ

(2p→5d)、その結果生じた空孔に電子が緩和する (3d→2p) 際に出てくる発光を測定する。その発光成分の一つであるラマン成分は価数に依存した入射エネルギー依存性を持つため、Ce 価数を解析することが可能である。また、スペクトルの温度および圧力依存性を観測するため、圧力装置として diamond anvil cell (DAC) を用いた。この DAC では向かい合わせにした 2 つのダイヤモンドの間に試料を挟み、ダイヤモンドを押さえつけることで圧力を発生させている。温度は He 循環型クライオスタットを用い制御した。

実験結果は CeRu₂Al₁₀ の圧力と Ce(Ru_{1-x}Fe_x)₂Al₁₀ の組成 x に対して、価数は単調な増加を示すことがわかった。(Fig.1) すなわち、CeRu₂Al₁₀ と Ce(Ru_{1-x}Fe_x)₂Al₁₀ の T₀ 消失付近での Ce 価数の大きな変化は、我々の測定精度の範囲内では観測されなかった。これは Doniach 相図では理解できない。これらの結果は、最近発表された星野らによる f 電子の遍歴性を積極的に取り入れた理論で理解されるかもしれない²⁾。

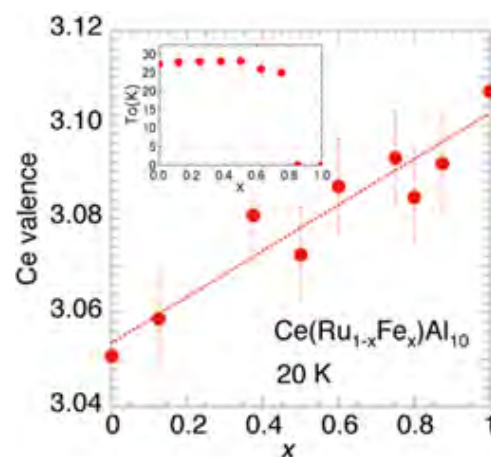
1) A. M. Strydom *et al.*, Physica B. **404**, 2981 (2009).2) S Hoshino, Y Kuramoto. Phys.Rev.Lett, **111**.026401(2013)

Fig.1 Ce(Ru_{1-x}Fe_x)Al₁₀における
Ce 価数の組成依存性